

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2002年 8月 7日

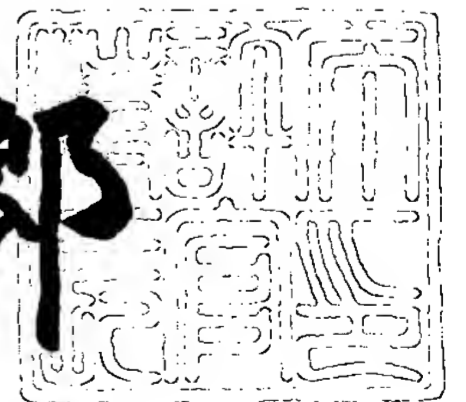
出願番号  
Application Number: 特願2002-230538  
[ST. 10/C]: [JP 2002-230538]

出願人  
Applicant(s): 松下電器産業株式会社

2003年 7月 9日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3054932

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033740213

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 08/00

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 柴田 礎一

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 日下部 弘樹

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 羽藤 一仁

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 長谷 伸啓

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 竹口 伸介

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 小原 英夫

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 松本 敏宏

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 粉川 勝蔵

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 浦田 ▲隆▼行

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100072431

【弁理士】

【氏名又は名称】 石井 和郎

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100117972

【弁理士】

【氏名又は名称】 河崎 眞一

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 066936

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0114078

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟む一对の電極、および前記電極の外側に配置され、前記電極に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流路を有する一对のセパレータ板を具備し、前記電極が触媒層およびガス拡散層からなり、前記ガス拡散層がこれに接している前記セパレータ板のガス流路内へ、0.10～0.25mm膨出していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】 前記セパレータ板が有するガス流路は、その幅が1.0～2.0mm、深さが1.0～2.0mmであり、前記ガス流路間に形成されるリブの幅が0.5～1.0mmである請求項 1 記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料として純水素、あるいはメタノールもしくは化石燃料からの改質水素、またはメタノール、エタノール、ジメチルエーテルなどの液体燃料を直接使い、空気や酸素を酸化剤とする燃料電池に関するものであり、とくに固体高分子を電解質に用いた燃料電池に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

一般的に高分子電解質型燃料電池の電極は、高分子電解質膜に接する触媒層、および触媒層の外面に配されたガス拡散層からなる。このガス拡散層は、主に次の三つの機能を持っている。その第一は、ガス拡散層のさらに外面に形成されたガス流路から触媒層中の触媒へ均一に燃料ガスまたは酸化剤ガスなどの反応ガスを供給するために、反応ガスを拡散する機能である。第二は、触媒層で反応により生成した水を速やかにガス流路に排出する機能である。第三は、反応に必要なまたは生成される電子を導電する機能である。従って、それぞれ高い反応ガス透過性、水透過性、および電子導電性が必要となる。従来の一般的な技術として、ガス透過能は、ガス拡散層を多孔質構造とすること、水透過能は、フッ素樹脂で

代表とされる撥水性の高分子などをガス拡散層中に分散し、水の詰まり（フラッディング）を抑制すること、電子導電性は、カーボン繊維や金属繊維、炭素微粉末などの電子導電性材料でガス拡散層を構成することでそれぞれ行われてきた。

### 【 0 0 0 3 】

#### 【発明が解決しようとする課題】

従来のガス拡散層は、上記の 3 つの機能を持つ材料として、カーボンペーパーが用いられてきた。しかしながら、ガス拡散層にカーボンペーパーを用いた燃料電池では、燃料ガスおよび酸化剤ガスの相対湿度が 9 8 % 以上になると、フラッディングによる電圧の低下が起こり、安定した動作が不可能であった。これは、カーボンペーパーが高いガス拡散能を持つため、セパレータ板のガス流路間のリブの下を潜って反応ガスが流れる伏流の割合が多くなり、反応ガスの圧損が低下し、水透過能が低下するために引き起こされる。したがって、反応ガスの流量を増やし、反応ガスの圧損を高くすることで、安定した動作は可能となる。しかし、そうすると燃料電池の効率が低下してしまう。

### 【 0 0 0 4 】

カーボン不織布をガス拡散層に用いた燃料電池では、燃料ガスおよび酸化剤ガスの相対湿度が 9 8 % 以上であっても安定した動作が可能である。しかし、カーボンペーパーを用いた燃料電池に比べ電圧が低下する。供給するガスの加湿度合いを高くしてもフラッディングに強い理由は、燃料電池を組み立てた状態では締結圧がかかることで、カーボン不織布が全体的に押しつぶされるため、カーボン不織布のガス透過能が低下し、伏流の割合が少なくなり、高い圧損が得られるためである。しかしながら、ガス透過能が低下するために、燃料電池の放電性能も低下してしまう。

### 【 0 0 0 5 】

本発明は、これら上記した従来の課題を解決するもので、ガス拡散層内でのガスの拡散性および余剰水の透過性を確保しうる燃料電池用電極を提供することを目的とする。

本発明は、ガス拡散に必要なガス拡散層の多孔度を確保することおよび伏流の割合を減少させることを両立させ、特に高加湿状態での発電において放電性能お

よび安定性の高い燃料電池を提供することを目的とする。

#### 【 0 0 0 6 】

##### 【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために本発明の燃料電池は、高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟む一对の電極、および前記電極の外側に配置され、前記電極に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給するガス流路を有する一对のセパレータ板を具備し、前記電極が触媒層およびガス拡散層からなり、前記ガス拡散層がこれに接している前記セパレータ板のガス流路内へ、0.10～0.25mm膨出していることを特徴とする。

#### 【 0 0 0 7 】

本発明による燃料電池においては、ガス流路に臨むガス拡散層の多孔度を保持しながら、ガス流路間に形成されるリブに接する部分ではガス拡散層を圧縮等の方法により多孔度を下げ、ガス拡散能を低下させることで伏流の割合を減少させる。これにより、電池性能と安定性に優れた燃料電池を提供することができる。

#### 【 0 0 0 8 】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の燃料電池は、電極のガス拡散層が、これに接している前記セパレータ板のガス流路内へ、0.10mm以上0.25mm以下膨出ないし垂れ込んだ状態となっていることを特徴とする。これにより、ガス流路に臨むガス拡散層の多孔度を保持しながら、ガス流路間に形成されるリブに接する部分のガス拡散層のガス透過能を下げることができる。

#### 【 0 0 0 9 】

ガス拡散層がガス流路内へ膨出した状態にする場合、ガス流路の断面積が極端に狭くなると反応ガスの圧損が急激に上昇するため、燃料電池の構成材の強度上問題となる。一方、伏流の割合が減少することで、セパレータ板のリブに接する部分の電極反応が起こりにくくなり、電池性能が低下してしまう。以上のことから、ガス拡散層がガス流路に膨出した状態にする場合のガス流路は、一定以上の断面積を持つ必要があり、かつリブの幅は狭い方が望ましい。

以上の観点から、セパレータ板のガス流路の形状は、ガス流路の幅が1.0m

m以上2.0mm以下、深さが1.0mm以上2.0mm以下であり、リブの幅が0.5mm以上1.0mm以下とすることが好ましい。ガス流路の寸法をこのようにすることで、ガス拡散層がガス流路内へ膨出することによるガス流路の断面積の変化およびリブの下での反応面積の減少の影響を無視できるようになる。

#### 【0010】

以下、本発明の実施の形態を説明する。

図1は一般的な高分子電解質型燃料電池の要部の構成を示す。1は高分子電解質膜を表す。高分子電解質膜1の外面に触媒層2A、2Bが配置され、さらにその外面にガス拡散層3A、3Bが配置されている。これらの外面には、セパレータ板4A、4Bが配置される。セパレータ板4A、4Bは、それぞれガス流路5A、5Bを有する。6A、6Bは、ガス流路とガス流路との間に形成されたリブを表す。

電極反応は触媒層2Aおよび2Bの触媒表面で起こる。アノード反応ガスは、例えばセパレータ板4Aに形成されたガス流路5Aからガス拡散層3Aを通り触媒層2Aへ、カソード反応ガスは、セパレータ板4Bのガス流路5Bからからガス拡散層3Bを通り触媒層2Bへそれぞれ供給される。アノード触媒層2Aでは、 $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$ の反応が起こり、カソード触媒層2Bでは、 $\frac{1}{2}\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$ の反応が起こり、全体として $\text{H}_2 + \frac{1}{2}\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{Q}$ となる。この反応により起電力が得られ、この電気エネルギーにより発電がなされる。同時に水の生成がカソード触媒層2Bで起こる。また、起電反応の際、アノード触媒層2Aで生じた $\text{H}^+$ は高分子電解質膜1中を移動しカソード触媒層2Bへ至る。

#### 【0011】

この $\text{H}^+$ イオンが移動する際、 $\text{H}^+$ イオン1個当たり5～20個の $\text{H}_2\text{O}$ 分子を同伴して移動する。高分子電解質膜は、十分な水が存在して初めて $\text{H}^+$ イオンの高い導電性を発揮する性質がある。したがって、高分子電解質膜中を移動する $\text{H}^+$ イオンに同伴して水が移動するため、不足する水を常に供給する必要がある。この水は、水蒸気として、セパレータ板における反応ガスの入り口側マニホールド孔からガス流路5A、5Bを経てガス拡散層3A、3Bを通り高分子電解質膜

へ供給される。また、カソードの触媒層内で生成された水のうち、高分子電解質膜が必要としない余剰水は、ガス拡散層 3 A および 3 B を通り、セパレータ板のガス流路 5 A、5 B を経て出口側マニホールド孔から排出される。

#### 【 0 0 1 2 】

このように、燃料電池では、水の出入りの多いガス拡散層 3 A 及び 3 B のガス拡散能および余剰水の排出能を確保することが重要であり、長期信頼性の点からも余剰水を速やかに排出できるように設計する必要がある。このような余剰水は、反応ガスに押し出される形でガス流路 5 A 及び 5 B やガス拡散層 3 A 及び 3 B の中を移動するため、余剰水の排水能を高めるためには、反応ガスの圧損を高く維持する必要がある。しかしながら、ガス流路とガス流路との間のリブ 6 A および 6 B に接しているガス拡散層のガス透過能が高いと、図 2 に示すように、リブの下をガスが潜り抜ける伏流の割合が大きくなるため、反応ガスの圧損が低下してしまう。

#### 【 0 0 1 3 】

図 2 はアノード側セパレータ板 1 4 の正面図である。一点鎖線 1 3 で囲まれた部分にアノードが配置される。燃料ガスの入り口側マニホールド孔 1 0 a から供給される燃料ガスは、マニホールド孔 1 0 a と出口側マニホールド孔 1 0 b とを連絡するガス流路 1 5 をとおるマニホールド孔 1 0 b から排出される。図の矢印 1 6 は、流路 1 5 をとおるガスの流れを表し、矢印 1 7 は、セパレータ板に接している電極のガス拡散層を流れる伏流を表す。図ではガス流路は 1 本の溝で構成されているが、並行する複数の溝によってガス流路を形成する場合もある。1 1 a および 1 1 b は、それぞれ酸化剤ガスの入り口側マニホールド孔および出口側マニホールド孔であり、1 2 a および 1 2 b は、それぞれ冷却水の入り口側マニホールド孔および出口側マニホールド孔である。

#### 【 0 0 1 4 】

本発明では、セパレータ板のガス流路間に形成されるリブに接するガス拡散層を圧縮してガス拡散能を減少させ、反応ガスの伏流の割合を減少させると共に、ガス拡散層のガス流路に臨む部分はガス流路内へ膨出させることでガス拡散層の多孔度を高い状態に保ち、ガス拡散能の低下を起こさないようにする。このよう

にして、電極中で余剰とされる水が排出できるようにすることで、電極中で水詰まりが起こらず、フラッディングを招くことがなく、ガス拡散性の低下をも引き起こすことのない、放電特性および信頼性の高い燃料電池を提供することができる。このように本発明のガス拡散層を用いることによって、放電特性および信頼性の高い燃料電池を提供することができる。

以下に図面を参照して本発明の実施の形態を詳しく説明する。

### 【 0 0 1 5 】

#### 実施の形態 1

図 3 は本実施の形態にかかる単電池の要部の断面図である。2 4 A はアノード側セパレータ板であり、アノードと対向する面には、溝で構成されたガス流路 2 5 A を有する。2 4 B はカソード側セパレータ板であり、同様にカソードと対向する面にはガス流路 2 5 B を有する。これらのセパレータ板 2 4 A および 2 4 B のガス流路 2 5 A および 2 5 B は、不可避な部分を除いて、それぞれ対向する位置に配置されている。ガス流路 2 5 A 間および 2 5 B 間にはそれぞれリブ 2 6 A および 2 6 B が形成される。

これら 2 枚のセパレータ板間に挟まれる電解質膜電極接合体 (M E A) は、高分子電解質膜 2 1 および高分子電解質膜を挟む一対の電極、すなわちアノードおよびカソードを具備する。電極は、いずれも高分子電解質膜に接する触媒層とその外側に配されるガス拡散層からなる。以下の図面においては、電極はいずれも一層のみで表している。そして、電極の圧縮や、膨出は、主としてガス拡散層のみである。

### 【 0 0 1 6 】

セパレータ板のガス流路の幅、深さ、および流路間のリブの幅を適切に設定するとともにセルの締結圧を調節することにより、電極のガス流路へ臨む部分 2 2 A および 2 2 B のガス拡散層をガス流路 2 5 A および 2 5 B 内へ膨出させ、一方リブ 2 6 A と 2 6 B で挟まれる電極部分 2 2 A および 2 2 B のガス拡散層を圧縮することができる。

このような構成によれば、ガス拡散層のガス流路に臨む部分は、良好なガスの拡散性および水分の透過性を保持し、しかもガスの伏流を軽減することができる

。

### 【 0 0 1 7 】

#### 実施の形態 2

図 4 は本実施の形態に係るガス拡散層の要部の断面図であり、図 5 は同ガス拡散層を用いた単電池の断面図である。

ガス拡散層を構成するカーボン不織布などを、あらかじめ対応するセパレータ板でプレスすることにより、ガス流路と対応した形状の未圧縮部 3 1 と残余の圧縮部 3 2 を形成する。圧縮部 3 2 には凹部 3 3 が形成される。このような加工をしたガス拡散層を組み合わせた ME A をセパレータ板で挟み、ガス拡散層の圧縮部 3 2 の凹部 3 3 に、セパレータ板のリブがはまるように単電池を組み立てる。

### 【 0 0 1 8 】

図 5 はそのような単電池を示す。高分子電解質膜 4 1 を挟む一対の電極、すなわちアノードおよびカソードは、前記ガス拡散層の凹部 3 3 を有する面とは反対側に触媒層が形成されてつくられている。アノードは、ガス拡散層の圧縮部を有する部分 4 3 A がセパレータ板 4 4 A のリブ 4 6 A に接し、ガス拡散層の未圧縮部を有する部分 4 2 A がガス流路 4 5 A 内へ膨出している。同様に、カソードは、ガス拡散層の圧縮部を有する部分 4 3 B がセパレータ板 4 4 B のリブ 4 6 A に接し、ガス拡散層の未圧縮部を有する部分 4 2 A がガス流路 4 5 B 内へ膨出している。

### 【 0 0 1 9 】

以上の実施の形態においては、ME A をアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板で挟んだ構成の単電池を示した。燃料電池は、多数の単電池を積層してセルスタックとして用いるのが普通である。そのようなセルスタックでは、ME A 間には、一方の面に燃料ガスの流路を形成し、他方の面に酸化剤ガスの流路を形成したアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板とを兼ねる単一のセパレータ板が挿入される。また、1 ～ 3 セル毎に冷却部が設けられる。冷却部は、背面に冷却水の流路を形成したアノード側セパレータ板とカソード側セパレータ板とを冷却水の流路を向き合うように組み合わせた複合セパレータ板で構成される。

## 【 0 0 2 0 】

## 【実施例】

以下実施例を説明する。

## 《実施例 1》

まず、触媒層を有する電極の作製方法を説明する。

アセチレンブラック粉末に、平均粒径が約 3 0 Å の白金粒子を 2 5 重量%担持した。これを電極の触媒とした。この触媒粉末のイソプロパノール分散液に、パーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエチルアルコール分散液を混合し、触媒ペーストとした。

一方、外寸 1 6 c m × 1 6 c m、厚み 0. 3 6 m m のカーボン不織布（東レ（株）製、T G P - H - 1 2 0）を、フッ素樹脂の水性ディスパージョン（ダイキン工業（株）製、ネオフロン N D 1）に含浸した後、乾燥し、4 0 0 °C で 3 0 分間加熱することで、撥水性を与えた。このカーボン不織布の一方の面に、触媒ペーストをスクリーン印刷法をもちいて塗布することで触媒層を形成した。このとき、触媒層の一部は、カーボン不織布の中に埋まり込んでいた。このようにして触媒層とカーボン不織布とからなる一対の電極を作製した。電極中に含まれる白金量は 0. 5 m g / c m<sup>2</sup>、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は 1. 2 m g / c m<sup>2</sup>となるようにした。

## 【 0 0 2 1 】

次に、外寸が 2 0 c m × 2 0 c m のプロトン伝導性高分子電解質膜の裏表両面に、前記一対の電極を触媒層が電解質膜に接するようにホットプレスで接合し、これを電解質膜電極接合体（M E A）とした。ここでは、プロトン伝導性高分子電解質膜として、パーフルオロカーボンスルホン酸を 5 0 μ m の厚みに薄膜化したものを用いた。

## 【 0 0 2 2 】

次に、導電性セパレータ板について説明する。

まず、平均粒径が約 1 0 μ m の人造黒鉛粉末 5 0 重量部、平均直径 5 0 μ m、平均長 0. 5 m m の繊維状グラファイト 3 0 重量部、および熱硬化性フェノール樹脂 2 0 重量部を押し出し混練機で混練し、この混練粉末をガス流路用溝や冷却

水流路用溝およびマニホールド孔を成形するための加工を施した金型に投入し、ホットプレスした。ホットプレスの条件は、金型温度 1 5 0 °C、圧力 1 0 0 k g / c m<sup>2</sup>で 1 0 分間とした。得られたセパレータ板は、外寸が 2 0 c m × 2 0 c m、厚みが 3 . 0 m m、ガス流路および冷却水流路の幅が 1 . 0 m m、深さが 1 . 0 m m、流路間のリブ幅が 1 . 0 m mであった。

上記のアノード側およびカソード側セパレータ板で M E A シートを挟み、リブに接する部分のカーボン不織布の厚みが 0 . 1 1 m m となるよう締結した。こうして図 3 に示すような単電池を作製した。電極のカーボン不織布がガス流路内へ膨出している量は最大 0 . 2 5 m m であった。

#### 【 0 0 2 3 】

##### 《実施例 2》

実施例 1 と同様にして、外寸が 2 0 c m × 2 0 c m、厚みが 3 . 0 m m、ガス流路および冷却水流路の幅が 2 . 0 m m、深さが 2 . 0 m m、リブ幅が 0 . 5 m m のセパレータ板を作製した。このセパレータ板 2 枚で M E A シートを挟み、リブに接する部分のカーボン不織布の厚みが 0 . 1 1 m m となるよう締結した。これにより、カーボン不織布がガス流路内へ膨出し、その量は最大 0 . 2 5 m m であり、図 3 に近い断面形状となった。

#### 【 0 0 2 4 】

##### 《実施例 3》

外寸 1 6 c m × 1 6 c m、厚み 0 . 2 1 m m のカーボン不織布（東レ（株）製、T G P - H - 1 2 0）を用いた他は実施例 1 と同様にして M E A を作製した。次に、実施例 1 と同様にして、外寸が 2 0 c m × 2 0 c m、厚みが 3 . 0 m m、ガス流路および冷却水流路の幅が 1 . 0 m m、深さが 1 . 0 m m、リブ幅が 1 . 0 m m のセパレータ板を作製した。前記のセパレータ板 2 枚で、M E A シートを挟み、リブに接する部分のカーボン不織布の厚みが 0 . 1 1 m m となるよう締結した。これにより、カーボン不織布がガス流路内へ膨出し、その量は最大 0 . 1 0 m m であり、図 3 に近い断面形状となった。

#### 【 0 0 2 5 】

##### 《実施例 4》

実施例 1 と同様にして、外寸が 2 0 c m × 2 0 c m、厚みが 3 . 0 m m、ガス流路および冷却水流路の幅が 1 . 0 m m、深さが 1 . 0 m m、リブ幅が 1 . 0 m m のセパレータ板を作製した。

次に、触媒層を有する電極の作製方法を説明する。

まず、アセチレンブラック粉末に、平均粒径が約 3 0 Å の白金粒子を 2 5 重量 % 担持した。この触媒粉末のイソプロパノール分散液に、パーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエチルアルコール分散液を混合し、触媒ペーストとした。

一方、ガス拡散層の基材として、太さ約 1 0 μ m、長さ約 5 μ m に切断したポリアクリルニトリル繊維を水に分散させ、これを抄紙してシートを作製した。次いで、エタノールにて濃度 4 0 重量 % に希釈したフェノール樹脂溶液に、前記のシートを含浸させ、約 1 0 0 ° C で 1 0 分間乾燥させて樹脂を硬化させた。これを窒素雰囲気下 2 0 0 0 ° C で 2 4 時間加熱し黒鉛化させ、厚み 0 . 2 m m のカーボンペーパーを得た。次に、撥水剤の水性ディスパージョン（ダイキン工業（株）製ネオフロン N D 1）と水とを重量比 1 : 1 0 の割合で混合した希釈液に、前記のカーボンペーパーを浸漬した後、約 6 0 ° C で 1 時間乾燥させた。さらに、アセチレンブラックとポリテトラフルオロエチレン（P T F E）とを重量比 3 : 1 の割合で分散させた水分散液を調製し、これをドクターブレードを用いて前記処理後のカーボンペーパー上に塗工して撥水層を形成した。これを約 6 0 ° C で 1 時間乾燥させた後、約 3 8 0 ° C で 1 5 分間焼成した。このカーボンペーパーを外寸が 1 6 c m × 1 6 c m となるように切断した。

#### 【 0 0 2 6 】

上記のカーボンペーパーに対応するセパレータ板のガス流路側の面とが接するように重ね合わせ、接触している面積当たり 1 0 0 k g / c m<sup>2</sup> の加圧をかけることで、セパレータ板のリブに当たっている部分のカーボンペーパーを潰し、図 4 に示すように、深さ 0 . 1 m m の溝 3 3 を形成した。このカーボンペーパーのもう一方の面、すなわち撥水層を形成した面に、触媒ペーストをスクリーン印刷法を用いて塗布することで触媒層を形成した。このとき、触媒層の一部は、カーボン不織布の中に埋まり込んでいた。このようにして触媒層とカーボン不織布とからなる一対の電極を作製した。電極中に含まれる白金量は 0 . 5 m g / c m<sup>2</sup>

、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は  $1.2 \text{ mg/cm}^2$  となるようにした。

#### 【0027】

次に、外寸が  $20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$  のプロトン伝導性高分子電解質膜の裏表両面に、一対の電極を触媒層が電解質膜に接するようにホットプレスで接合し、これを MEA とした。高分子電解質膜は、実施例 1 と同じものを用いた。前記のセパレータ板 2 枚で MEA シートを挟み、締結して図 5 のような単電池を構成した。締結圧は単位面積当たり  $15 \text{ kgf/cm}^2$  とした。なお、セパレータ板のリブと MEA のガス拡散層の圧縮部分とが一致するようにした。

#### 【0028】

##### 《比較例 1》

まず、実施例 1 と同様にして、外寸が  $20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ 、厚みが  $3.0 \text{ mm}$ 、ガス流路および冷却水流路の幅が  $1.0 \text{ mm}$ 、深さが  $1.0 \text{ mm}$ 、リブ幅が  $1.0 \text{ mm}$  のセパレータ板を作製した。

ガス拡散層の基材には、実施例 4 において、セパレータ板で加圧する前の段階のカーボンペーパーを用いた。これを外寸が  $16 \text{ cm} \times 16 \text{ cm}$  となるように切断した後、撥水層を形成した面に実施例 1 と同じ触媒ペーストを用いて触媒層を形成した。このとき、触媒層の一部は、カーボン不織布の中に埋まり込んでいた。

これらのセパレータ板、および電極を用いた他は実施例 1 と同様にして、図 6 に示すような単電池を組み立てた。図 6 において、51 は高分子電解質膜を示す。高分子電解質膜を挟むアノード 52A およびカソード 52B は、セパレータ板 53A および 53B のガス流路 54A および 54B に臨む部分のガス拡散層は、その他の部分とほぼ同じような性状を有している。

#### 【0029】

##### 《比較例 2》

また、MEA の調整を実施例 1 と同一の方法で行った。

実施例 1 と同様にして、外寸が  $20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ 、厚みが  $3.0 \text{ mm}$ 、ガス流路および冷却水流路の幅が  $0.5 \text{ mm}$ 、深さが  $1.0 \text{ mm}$ 、リブ幅が  $1.0 \text{ mm}$

mのセパレータ板を作製した。このようにして作製したセパレータ板2枚で、実施例1と同じMEAシートを挟み、リブに接する部分のカーボン不織布の厚みが0.11mmとなるよう締結した。このとき、セパレータ板のガス流路の幅が狭いために、カーボン不織布のガス流路への膨出が少なく、全体的に圧縮され、図7に示すように、膨出している量が0.05mm以下であった。

### 【0030】

#### 《比較例3》

実施例1と同様にして、外寸が20cm×20cm、厚みが3.0mm、ガス流路および冷却水流路の幅が1.0mm、深さが0.5mm、リブ幅が1.0mmのセパレータ板を作製した。このセパレータ板2枚で、実施例1と同じMEAシートを挟み、リブに接している部分のカーボン不織布の厚みが0.11mmとなるよう締結した。これにより、カーボン不織布がガス流路内へ膨出し、その量は0.25mmであり、図3に近い断面形状となった。

### 【0031】

#### 《比較例4》

また、MEAの調整を実施例1と同一の方法で行った実施例1と同様にして、外寸が20cm×20cm、厚みが3.0mm、ガス流路および冷却水流路の幅が1.0mm、深さが1.0mm、リブ幅が2.0mmのセパレータ板を作製した。このセパレータ板2枚で、実施例1と同じMEAシートを挟み、リブに接している部分のカーボン不織布の厚みが0.11mmとなるよう締結した。これにより、カーボン不織布がガス流路内へ膨出し、その量は0.25mmであり、図3に近い断面形状となった。。

### 【0032】

以上の実施例1～4および比較例1～4に示した単電池を100セル積層した電池スタックを組み立て、電池スタックの両端部には、ステンレス鋼製の集電板および電気絶縁板を介して端板を重ね合わせ、端板同士を締結ロッドで固定した。締結圧はセパレータ板の面積当たり15kgf/cm<sup>2</sup>とした。なお、電池スタックは、2セル毎に冷却部を設けた。冷却部は、一方の面に冷却水の流路を設け、他方の面に燃料ガスの流路を設けたセパレータ板と、一方の面に冷却水の流

路を設け、他方の面に酸化剤ガスの流路を設けたセパレータ板とを、冷却水の流路を向き合わせて組み合わせた複合セパレータ板で構成した。その他の部分において、MEAとMEAとの間に挿入されたセパレータ板は、一方の面に燃料ガスの流路を有し、他方の面に酸化剤ガスの流路を有するセパレータ板である。

### 【0033】

このように作製したそれぞれの高分子電解質型燃料電池を、75℃に保持し、アノードに75℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソードに75℃の露点となるよう加湿・加温した空気をそれぞれ供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、全ての電池で9.5V～9.6Vの電池開放電圧を得た。これらの電池を燃料利用率85%、酸素利用率50%、電流密度0.7 A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電試験を行い、出力特性の時間変化を計測した。表1に実施例1～4および比較例1～4の電池スタックの水素-空気型燃料電池としての放電特性の平均値を示した。

### 【0034】

【表1】

	ガス拡散層		セパレータ仕様 (mm)			電池スタック の電圧(V)
	種類	膨出量 (mm)	ガス 流路幅	深さ	リブ幅	
実施例1	カーボン不織布	0.25	1.0	1.0	1.0	6.2
実施例2	カーボン不織布	0.25	2.0	2.0	0.5	6.3
実施例3	カーボン不織布	0.10	1.0	1.0	1.0	6.2
実施例4	カーボンペーパー	0.10	1.0	1.0	1.0	6.2
比較例1	カーボンペーパー	0.00	1.0	1.0	1.0	安定動作せず
比較例2	カーボン不織布	～0.05	0.5	1.0	1.0	5.0
比較例3	カーボン不織布	0.25	1.0	0.5	1.0	放電不可能
比較例4	カーボン不織布	0.25	1.0	1.0	2.0	5.7

### 【0035】

表1から明らかなように、実施例1～4では、8000時間以上にわたって約6.2Vの電池電圧を維持することが確認された。

比較例1の電池は、連続運転を行うと初期1～3時間程度は約12.8kW（5.7V－2.24A）の電池出力を維持した。しかしながら、1～3時間経過後か

ら、電池の電圧が変動を始め、電池に濡れすぎによるフラッディング現象が確認された。実施例 4 と比較例 1 のアノード反応ガスおよびカソード反応ガスの圧損を比較すると、比較例 1 の圧損の方が 3 0 % 低くなっており、この圧損の低下がフラッディング現象を引き起こす原因であり、このような圧損の低下が起こる原因は伏流の割合が増大したためである。

#### 【 0 0 3 6 】

比較例 2 では安定した動作は確認できたものの、電池スタックの電圧が実施例 1 ～ 4 に比べ 1 2 V 低下している。比較例 2 では、カーボン不織布が全体的に潰されているのに対し、実施例 1 および 3 では、カーボン不織布がガス流路に膨出することで未加圧の状態に近いガス透過能が維持されるため、このような電圧差が生じたものと思われる。

比較例 3 では、初期から急激な電圧の低下を起こした。無負荷状態で比較例 2 と 3 のカソード反応ガスの圧損を比較すると、比較例 3 の圧損は比較例 2 の約 3 倍の高さであった。試験装置の能力から、このような高い圧損水準では、酸素利用率が 5 0 % となるために必要な反応ガス流量を送り込むことができない。したがって、反応ガスの欠乏が放電不可能となった原因である。

#### 【 0 0 3 7 】

比較例 4 では、安定した動作は確認できたものの、電池スタックの電圧が実施例 1 ～ 4 に比べ 5 V 低下した。実施例 1 ～ 4 および比較例 2 ～ 4 では、リブに接する部分のガス拡散層が潰されているために伏流の割合が減少しており、そのため、リブの下触媒層では反応ガス濃度の供給不足による反応分極が大きくなっている。比較例 4 は、実施例 1 に比べリブの幅が広いこと、反応分極が高い部分が多くなるため、このような電圧の低下が引き起こされている。

以上のように、セパレータ板のガス流路に M E A のガス拡散層を膨出した状態であり、かつそのときのガス流路が適切な寸法を持っていることで、電極内でのフラッディングを抑制し、かつ、ガス拡散性および水蒸気透過性を良好に保つことが可能となり、放電性能および信頼性の高い電極および燃料電池を提供することが可能となる。

#### 【 0 0 3 8 】

**【発明の効果】**

以上のように本発明によれば、ガス拡散層およびガス流路の寸法を最適化することによって、触媒層中の触媒に均一に反応ガスを供給し、かつ生成された余剰水を速やかに排出することが可能となり、高い放電性能と信頼性を持つ燃料電池を実現することができる。

**【図面の簡単な説明】****【図 1】**

一般的な高分子電解質型燃料電池の単電池の要部の断面図である。

**【図 2】**

反応ガスの伏流を説明するためのセパレータ板の正面図である。

**【図 3】**

本発明の一実施例における単電池の要部の断面図である。

**【図 4】**

本発明の他の実施例のガス拡散層の部分断面図である。

**【図 5】**

同ガス拡散層を用いた単電池の要部の断面図である。

**【図 6】**

比較例 1 の単電池の要部の断面図である。

**【図 7】**

比較例 2 の単電池の要部の断面図である。

**【符号の説明】**

- 1 高分子電解質膜
- 2 A、2 B 触媒層
- 3 A、3 B ガス拡散層
- 4 A、4 B セパレータ板
- 5 A、5 B ガス流路
- 6 A、6 B リブ
- 1 0 a、1 0 b 燃料ガスのマニホールド孔
- 1 4 セパレータ板

1 5 ガス流路

1 7 伏流

2 1 高分子電解質膜

2 2 A、2 2 B ガス拡散層の膨出部

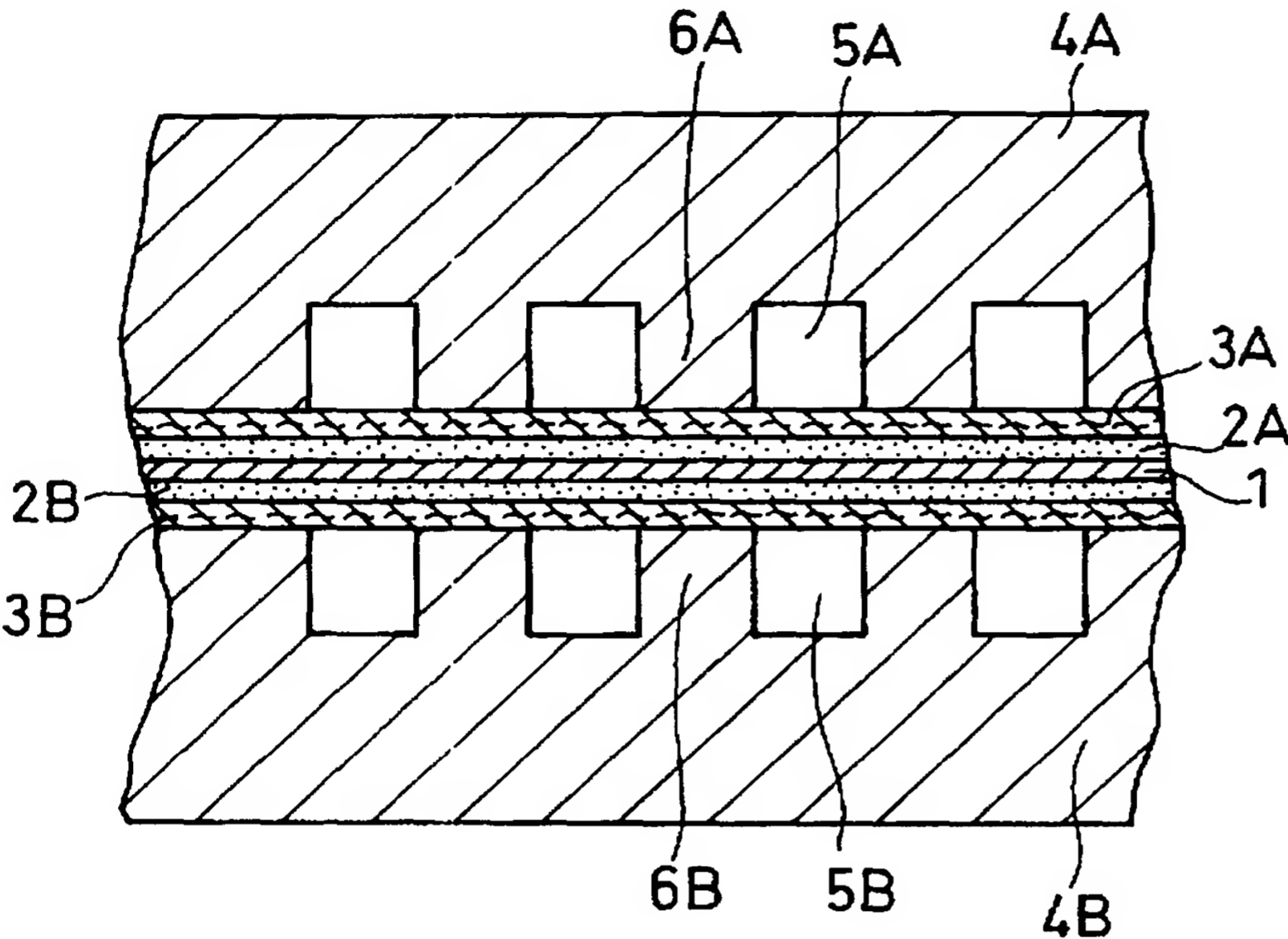
2 3 A、2 3 B ガス拡散層の圧縮された部分

2 4 A、2 4 B セパレータ板

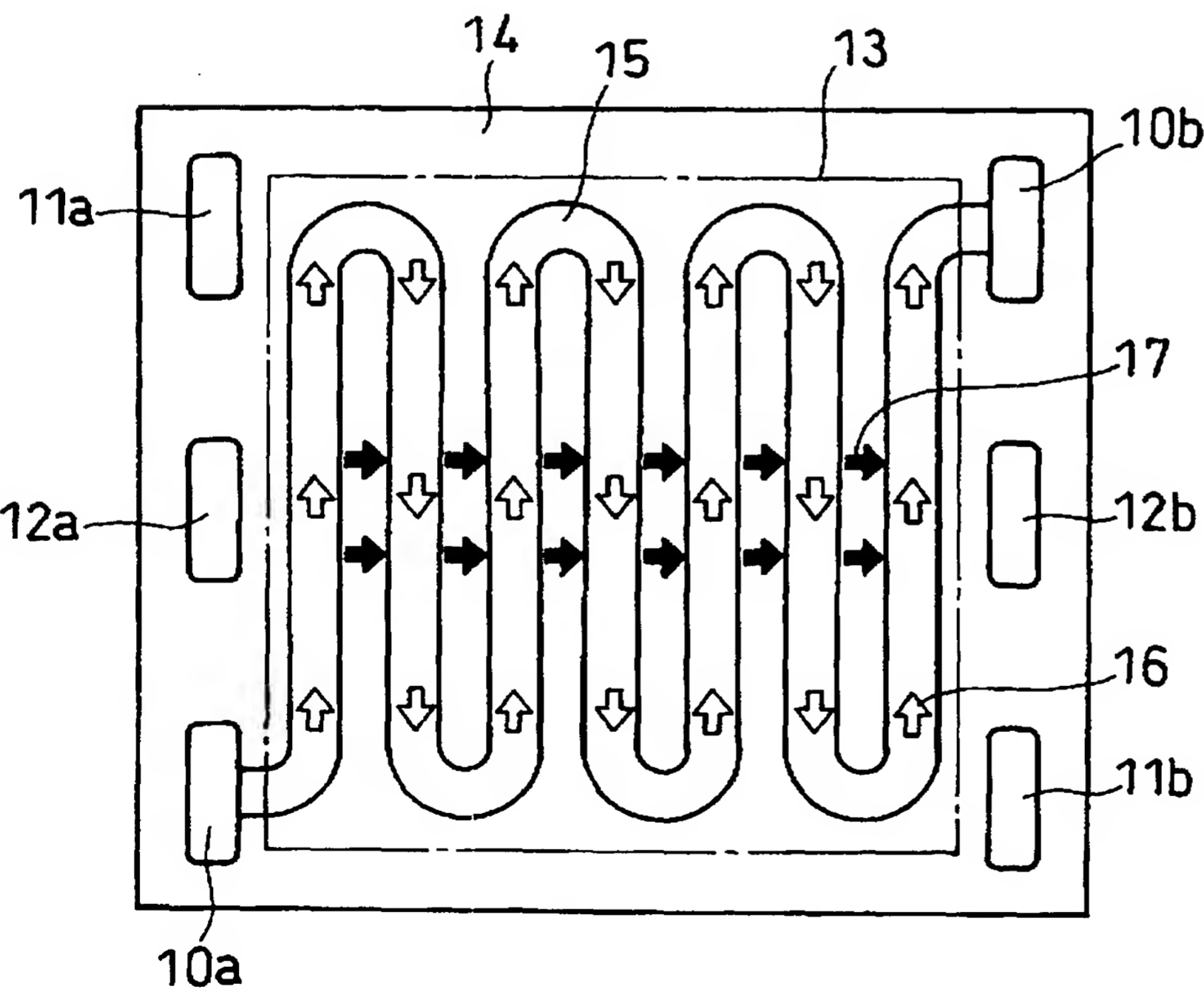
2 5 A、2 5 B ガス流路

【書類名】 図面

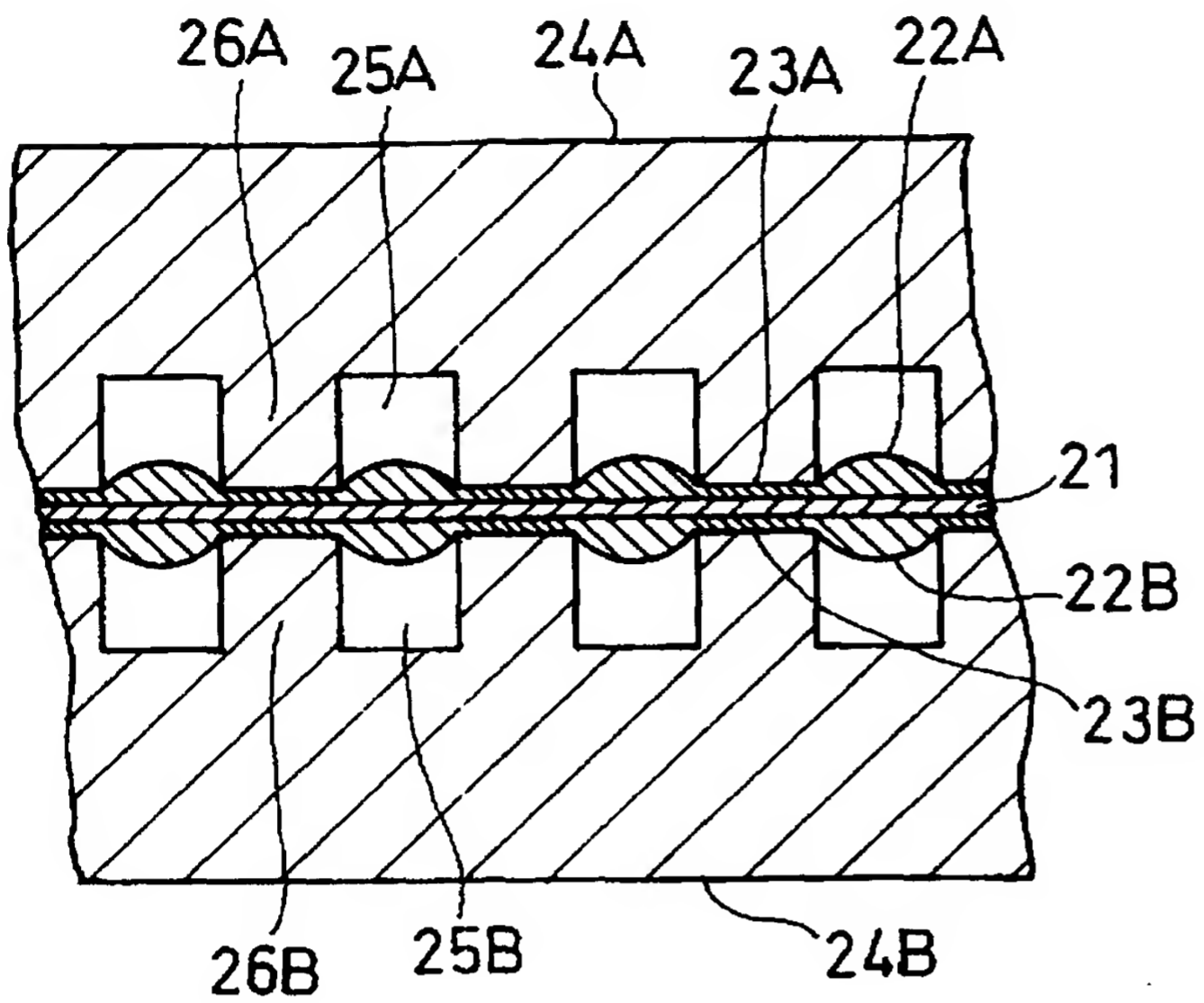
【図 1】



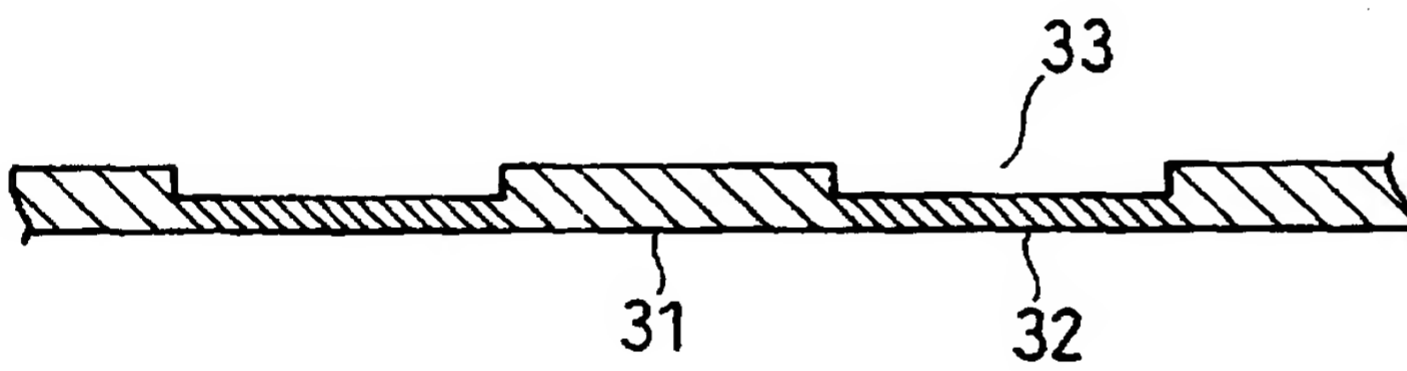
【図 2】



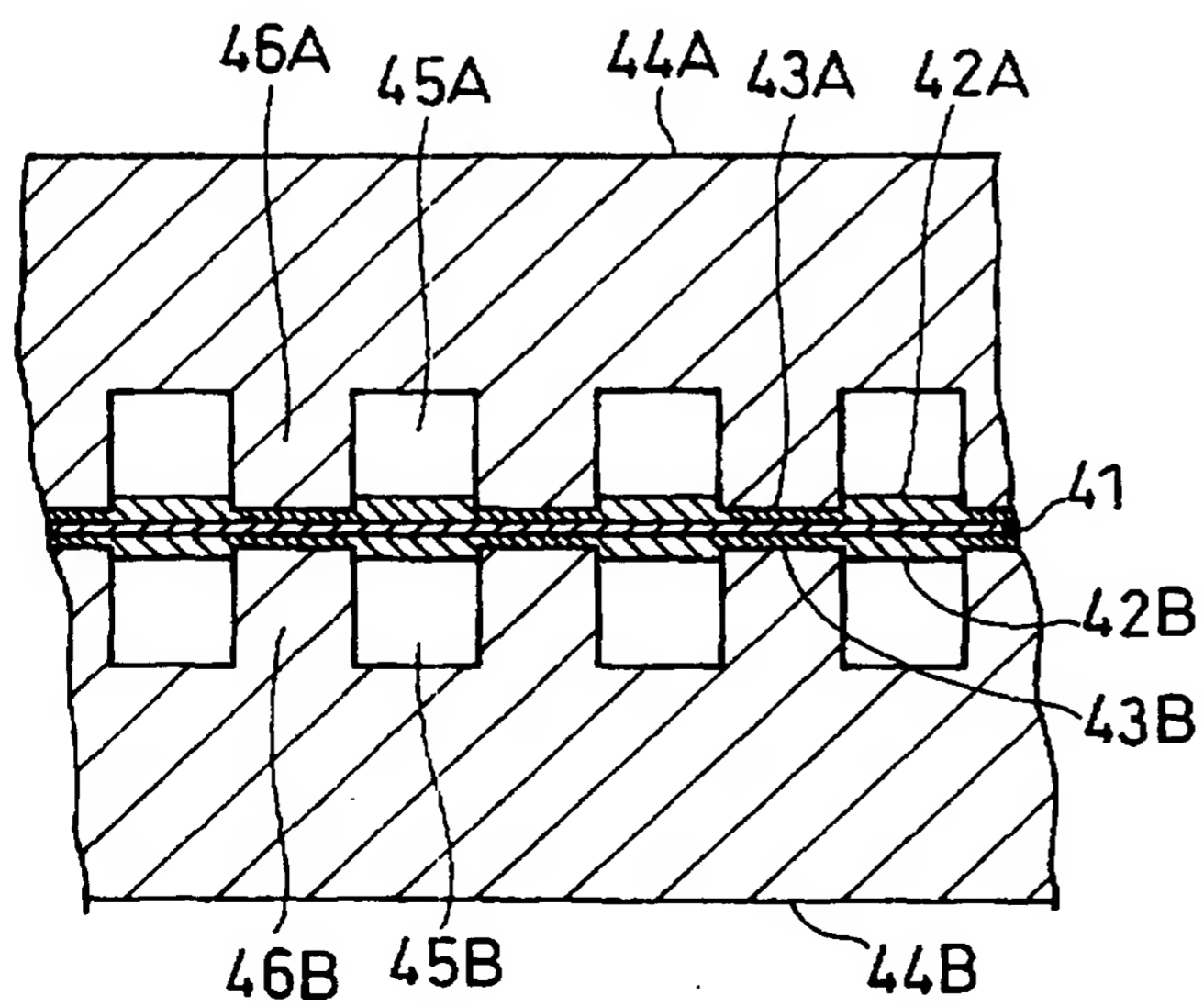
【図 3】



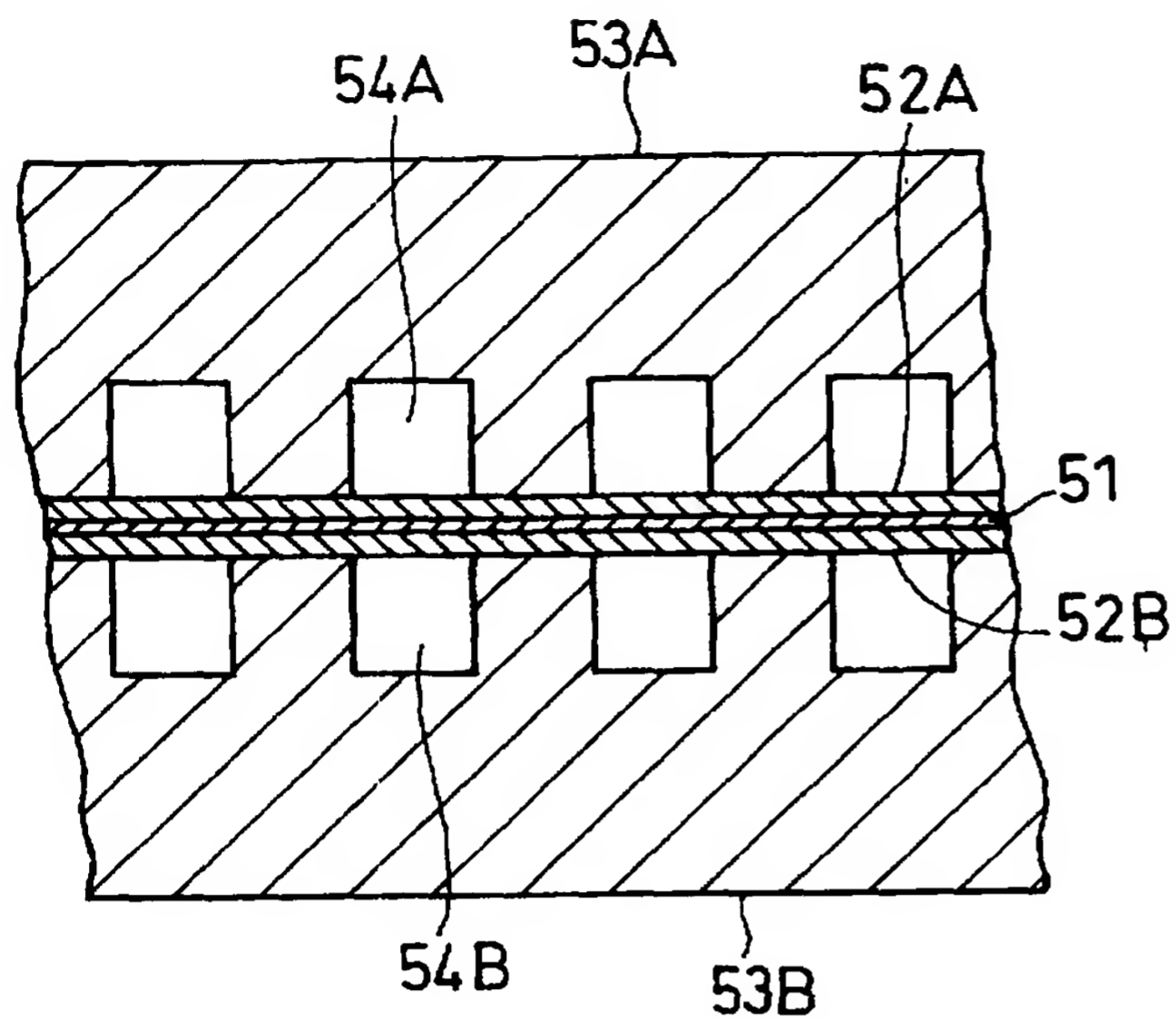
【図 4】



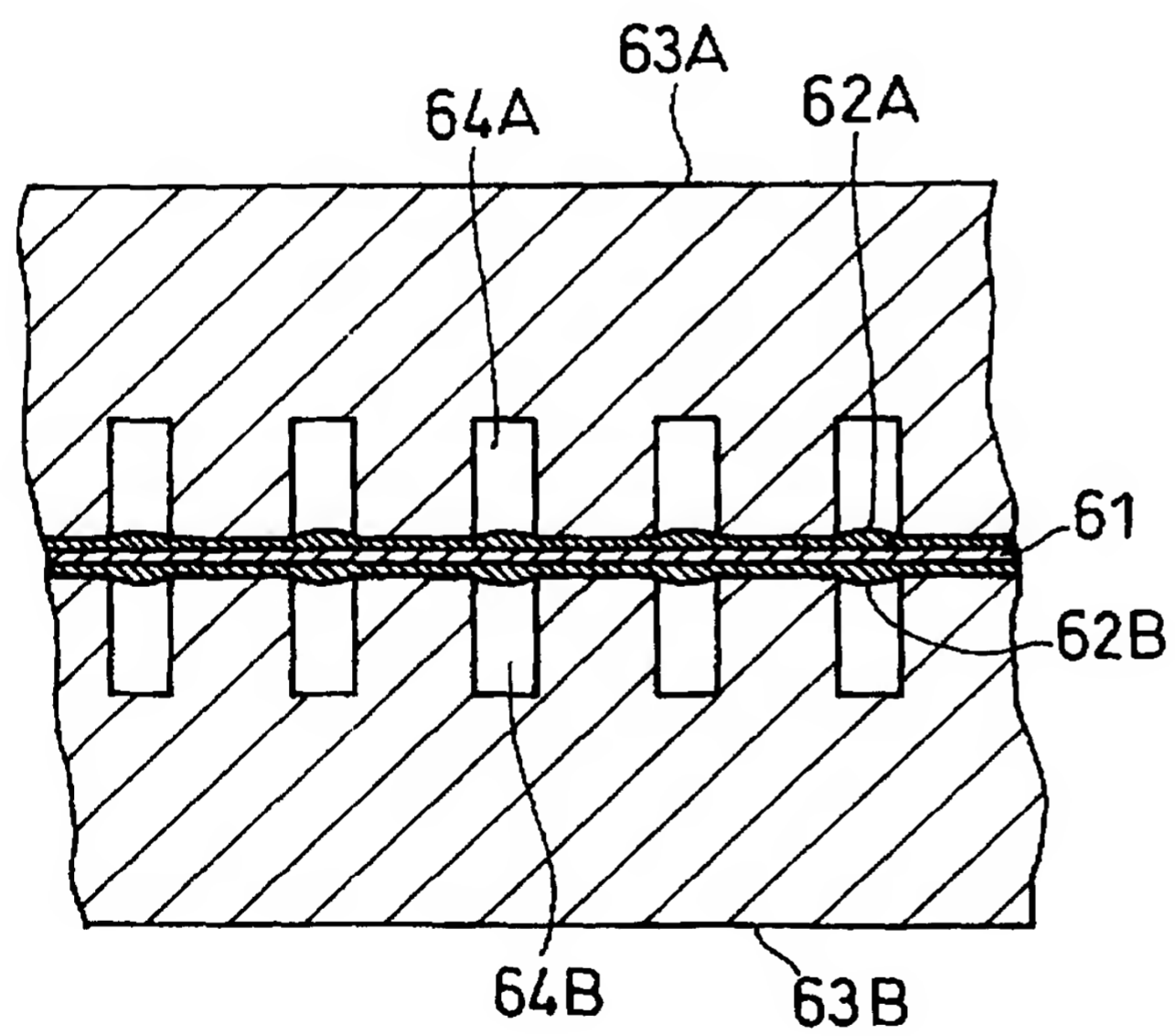
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ガス拡散層の性状およびガス流路の寸法を最適化して、触媒層中の触媒に均一に反応ガスを供給し、かつ生成された余剰水を速やかに排出することができ、高い放電性能と信頼性を持つ燃料電池を提供する。

【解決手段】 セパレータ板のガス流路内にMEAのガス拡散層が膨出した状態とし、かつセパレータ板のガス流路が、ガス拡散層が膨出するのに十分な幅と深さを有し、ガス流路間のリブの幅を狭くする。

【選択図】 図3

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2－2 3 0 5 3 8
受付番号	5 0 2 0 1 1 7 5 8 1 4
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 4 年 8 月 8 日

< 認定情報・付加情報 >  
【提出日】 平成14年 8月 7日

特願 2 0 0 2 - 2 3 0 5 3 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1 . 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

氏 名 松下電器産業株式会社